

ポリプロピレンフィルムの機械的性質 (第1報)

変形と破壊について

木 村 里 雄^{*}・和 田 善 男^{**}

Mechanische Eigenschaften der Polypropylenfilme (I)

Über ihre Formänderung und Brucherscheinung

Satoo KIMURA, Yoshio WADA

(Eingegangen am 31. März 1965.)

Abstraktion

Um die Eigenschaften der Polypropylenfilme zu erkennen sind die Erforschungen über ihre Spannungsdehnungsschaubild erforderlich. Zwecks Erforschungen der Eigenschaften des Polypropylenfilms untersuchten wir mikroskopisch über die Erscheinungen während des in 0°—, 45°— und 90°— Richtung gespannten Zugvorganges.

Die wichtigen Versuchsergebnisse sind wie folgende :

- i) Die Spannungsdehnungslinie der Abb. 4 zeigt zunächst ein langsames Anwachsen der Dehnung bei steigender Belastung, und zwar sind die Dehnungen den Spannungen verhältnismäßig. Wird dieser Grenzwert, den wir Proportionalitätsgrenze (obere Streckgrenze) nennen, überschritten, so tritt ein plötzliches und starkes Abfallen der Spannung ein ; der Film beginnt zu fließen. Die Spannung, bei der das Fließen eintritt, heisst untere Streckgrenze. Die oberen und unteren Streckgrenze sind wie folgt :

Zugrichtung	0°	45°	90°
obere Streckgrenze kg/mm ²	2,338	2,425	2,456
untere Streckgrenze kg/mm ²	1,869	1,773	1,674

- ii) Haben wir einen Film in die Zerreissmaschine nach Instron gespannt, so zeigten sich bei Beginn des Fließens feine Linien, die sich unter 104° bis 110° kreuzen und mit der Filmachse einen Winkel von 52° bis 55° bilden ; sie heissen Fließfiguren (Abb. 10. Beziehung zwischen der oberen und unteren Streckgrenzen und dem Probefilmaussehen, Bild (0°—5) : Fließfiguren in Nr. 5. bei 0°—Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach, Bild (0°—6) : Fließfiguren in Nr. 6. bei 0°—Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.) und lassen deutlich erkennen, dass eine Umlagerung der Moleküle in Innenstruktur des Films stattgefunden hat. Solche Werte der Fließwinkel und theoretische Werte, durch Charakteristikskurventheorie ausgeführt, ist fast miteinander übereinstimmt.

- iii) An einer Stelle des Films zeigt sich aber bald eine mit blossem Auge zu erkennen-

* 教授 ** 文部技官

ende Einschnürung und dehnt in eine Achsenrichtung aus, und zwar die Fließfiguren gehen der Einschnürung vor. Nach dem gleichmässigen Ausdehnen im Film durch Einschnürung verschwinden die Fließfiguren.

- iv) Die Stetigkeit zwischen Dehnungen und Spannungen besteht erst wieder nach der Überwindung der Fließperiode, was sich äusserlich am Film durch Verschwinden der Fließfiguren bemerkbar macht. In jeder Richtungsspannung des Films kreuzt sich die Spannungsdehnungslinie mit einer Punkt auf der Abzisse, und zwar verläuft geradlinig. Folglich wird das Spannungsdehnungsschaubild dargestellt wie folgt :

$$\varepsilon_t = \frac{\sigma_{ta}}{E} + \varepsilon_k + \frac{\sigma_{ta} - \sigma_e}{F},$$

worin ε_t : Dehnung, σ_{ta} : Zugspannung, E : Youngscher Koeffizient, F : plastischer Koeffizient, σ_e : untere Streckgrenze, ε_k : Dehnung in Fließbereich getrennt bedeutet.

Zugrichtung	ε_k %	E kg/mm ²	F kg/mm ²
0°	90	29,05	0,87
45°	152	36,42	0,70
90°	215	49,12	0,58

1 緒 言

繊維もしくは高分子物質の応力—ひずみ曲線を究明することは、これらの物質が種々の物理加工を受けた場合、いかなる結果になるかを判断するのに大きな指針となる。したがってこのような繊維、高分子物質の変形過程を究明し、これに理論的説明を与えることは意義深いものがある。

各種高分子物質についての応力—ひずみ曲線はその構造および測定方式、条件、時間などによってそれぞれ特徴をもつ形状を示す。Alfrey はこれらの曲線の示す切断時の全面積をもって表わす破壊仕事量によって、各種繊維の機械的性能を表示しているが変形過程の観察が必要である。たとえばラミーなどの麻繊維およびフォルチザンのような高緊張、配向セルロース繊維の鎖状分子の剛性、分子間の相互作用が大きく、結晶化も比較的容易に行なわれ、かつ配向度が大きい場合には、曲線の初期部分の傾斜はきわめて大きい、切断伸びは一般に小さくなっている。同様な鎖状分子骨格をもっているアセテートのように水酸基の大部分が酢酸基に置換される場合には相互作用が低下するために、分子相互の滑脱が容易になり比較的大きな流動過程の部分を示す。またセルロース繊維でも普通レーヨンのように結晶化度も低く分子配向度も低い場合には、曲線の初期部分の傾斜も低くなり、流動部分も大きくなるが、タイヤコード用の強力レーヨンのように結晶化度が低く、高配向度の場合には、初期の傾斜および変形部分は大きくなる。

合成繊維の応力—ひずみ曲線はそれを構成する鎖状分子の性質により変化するとともに、また製造時の条件により結晶化度、配向度も大きく変えることができるので、その影響によって著しく変化に富んだものになる。

繊維、高分子物質の応力—ひずみ曲線に対して従来から種々の研究がなされているが、変形過程現象についての究明がまだ残されているように思われる。高分子物質は鎖状網目構造であることから、ゴムとプラスチックの中間の構造的性質を有し、その変形説明はその中間のものとして行なっ

てきたが、応力—ひずみ曲線に対する内部構造的解明を、ゴム状物質でえられた成果で行なうことはできない。それだけでは理解し説明できない現象が発生する。そこで最近では金属における結晶学的観点にたった考察が行なわれている。本実験ではポリプロピレンフィルムの無延伸のものを選び、JIS規格によるダンベル試験片をいろいろな方向に採取し、これにインストロン試験機でもって二次元的破壊過程がえられるよう実験を行なって内部構造の挙動について究明することにした。この場合特に臨界応力以後、すなわち塑性変形以後における破損および破壊機構を内部構造的に検討することを目的とした。そうして終局にはこのような破壊現象を基礎として繊細な単糸の引張試験のような場合の、すなわち一次元的な外力を受けて生ずる変形破壊の挙動を理論的に究明するにある。

2 実験方法

2・1 試料の採取方法と作成

一般に高分子フィルムのような軟質材料に対する試験片の作成は打抜刃によってダンベル型に作るよう規定されている。この場合刃こぼれなどによってできる切断面の不規則な形状は、その後の引張試験の機械的性質を左右することがきわめて大きいので特にこれの作成に当たっては細心の注意が必要である。

ここで本実験では JIS K6732 に定められてある農業用塩化ビニルフィルムに対する形状寸法を採用した。この場合のダンベル型試験片の寸法を示すと第1図のようである。なおフィルムが薄いものに対しては ASTM D 882-54P に定めてあるダンベルのかわりにたんざく形試験片を用いることができるようになっている。

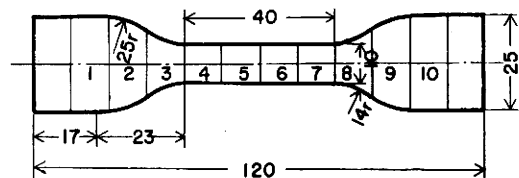
試験片はポリプロピレンフィルム製造時のカレンダー方向に平行な方向を基準にして 0° 方向とし、これに直角な 90° 方向およびこの両者の中間の 45° 方向にそれぞれ採取した三種類として 0° 、 90° および 45° 方向と名付けた。

2・2 ゲージ長さと引張速度の決定

引張速度は一定にする必要がある。一般に引張速度の小さいほうが比較的信頼される数値に接近する。そうして実験結果、弾性率の小さいものの引張速度は速く、大きいものほど遅くする必要がある。

そこで各種材料の JIS 規格によると、前項に述べた試験片を用い、試験条件として引張速度 $200\text{mm}/\text{min}$ 、温度 $25 \pm 3^\circ\text{C}$ が規定されている。本実験ではインストロン引張試験機による定速伸長法を採用して、ゲージ長さを 100mm とし、引張速度 $200\%/ \text{min}$ として実験を行なってみたが、伸びきって本実験の目的である試験片の破壊を行なうことができなかった。

そのため次に示すような方法でゲージ長さと引張速度を決めた。まず第1図に示すようなダンベル型試験片に 10mm 間隔に標線をいれ、試験片全体を12等分し、両端 10mm ずつ残して1から10までの記号を付けた。図から明らかなように4～7の間は幅は一定であるが、1～3および8～10の間の幅は異なっている。引張試験を行なってその結果を種々観察していく場合、4～7の平行部分を当然重視する必要があるが、



JIS K 6732

Abb. 1. Probefilmform.

1～3および8～10部分がこの平行部分に及ぼす相関作用を調べてみた。

そこでゲージ長さと変形速度をそれぞれ次のように決めて予備実験を行なった。

Tabelle 1. Prüfungsmethoden.

Methode	Lehrlänge mm	Stellung	Zuggeschwindigkeit %/min
1	100	1～10	200
2	80	2～9	250
3	80	2～9	100
4	40	4～7	100
5	40	4～7	200

実験結果を示すと第2図のようである。なお前記の各方法による引張試験を行なった場合、試験片の切断箇所と切断数%との関係を示すと第3図のようになる。以上の予備実験の結果から伸びの均一性と破壊ひんど分布を考えて第3の実験方法を取り上げゲージ長さ、引張速度をそれぞれ80mm, 100%/minにして本実験を行なうことにした。なおフィルムの厚さは $27,6/1000$ mmである。

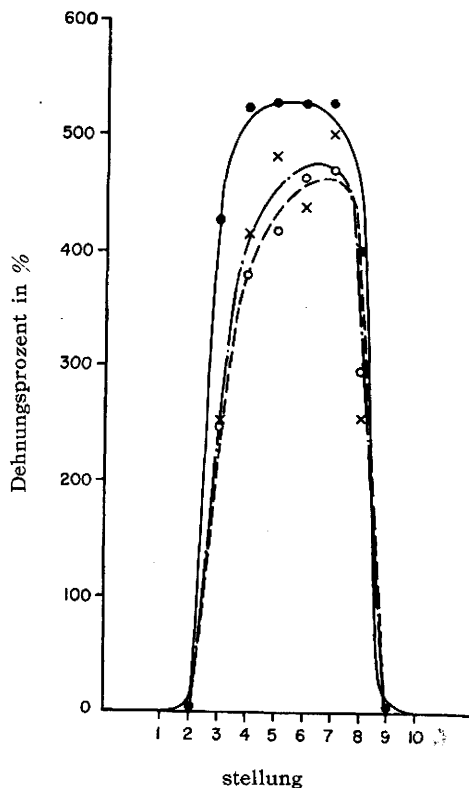


Abb. 2. Einfluss der Zuggeschwindigkeit im Bereich von 100%/min bis 250%/min auf den Dehnungsprozent und die Lehrlänge.

—•— bei Lehrlänge von 100mm, 200%/min.

..... bei Lehrlänge von 80mm, 250%/min.

—×— bei Lehrlänge von 80mm, 100%/min.

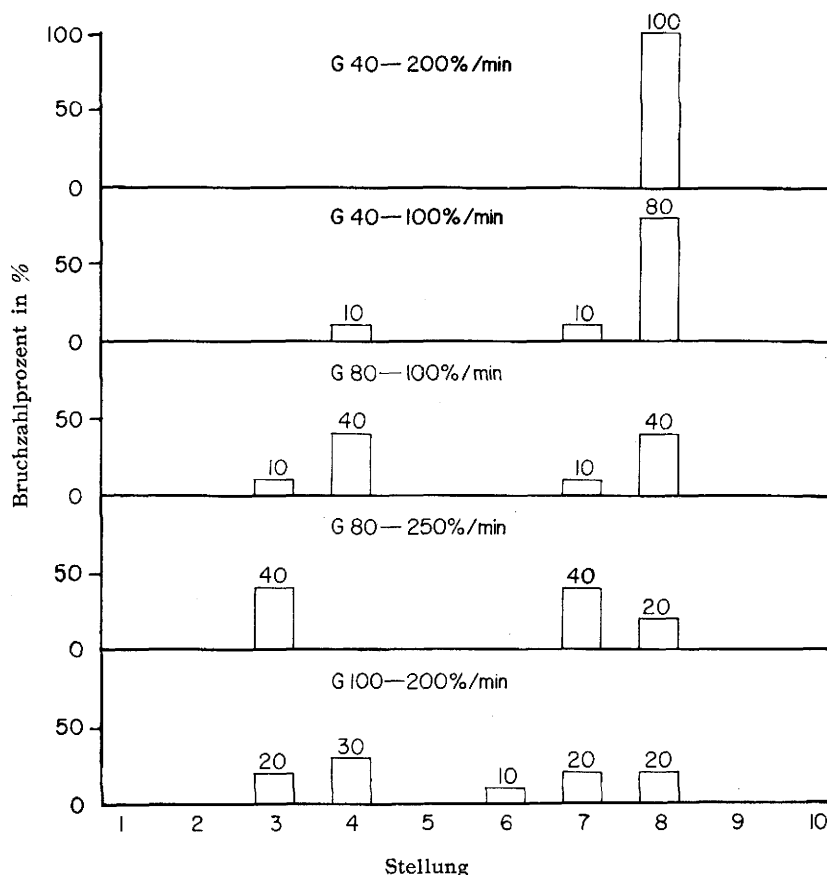


Abb. 3. Einfluss der Lehlänge und Zuggeschwindigkeit (G 40—200%/min, G 40—100%/min, G 80—100%/min, G 80—250%/min und G 100—200%/min) auf den Bruchzahlprozent und die Stellungen 1, 2, 3.....10.

3 す べ り 理 論

一般に厳密な意味での平面応力は実在しない。しかし本実験のようなきわめて薄いフィルムに対しては近似的に平面応力問題として取扱ってもさしつかえがない。そこできわめて薄い厚さの様な断面の長いポリプロピレンフィルムの引張試験の場合を考える。ここでフィルムの面方向の変位はフィルムの厚さ方向に一樣であるとする。フィルムの厚さの中央に x , y 軸をとり、 x , y 軸に垂直な面に生ずる垂直応力をそれぞれ σ_x , σ_y 、せん断応力をそれぞれ τ_{xy} , τ_{yx} とすると、これらの応力もフィルムの厚さ方向に一定であって他の応力成分は 0 になる。この場合物体力がなければこれらの応力は次の平衡方程式を満足しなければならない。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \sigma_x}{\partial x} + \frac{\partial \tau_{yx}}{\partial y} &= 0 \\ \frac{\partial \tau_{xy}}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_y}{\partial y} &= 0 \end{aligned} \quad \dots\dots\dots(1)$$

ここで x , y 方向のひずみをそれぞれ ϵ_x , ϵ_y 、せん断ひずみを σ_{xy} とすると適合条件式は次のようになる。

$$\frac{\partial^2 \varepsilon_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \varepsilon_y}{\partial x^2} = \frac{\partial^2 \gamma_{xy}}{\partial x \partial y} \quad \dots\dots\dots(2)$$

また別に平面応力に対する応力関数 x を導入すると次のように表わすことができる。

$$\sigma_x = -\frac{\partial^2 x}{\partial y^2}, \quad \sigma_y = -\frac{\partial^2 x}{\partial x^2}, \quad \tau_{xy} = -\frac{\partial^2 x}{\partial x \partial y} \quad \dots\dots\dots(3)$$

x を任意の関数とすると、(3)式で与えられる応力は常に平衡条件式を満足する。(3)式を(2)式に代入すると次の式がえられる。

$$\frac{\partial^4 x}{\partial x^4} + 2\frac{\partial^4 x}{\partial x^2 \partial y^2} + \frac{\partial^4 x}{\partial y^4} = \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) x = 0 \quad \dots\dots\dots(4)$$

これは弾性領域において(3)式の応力に相当するひずみの成分が適合条件を満足するためには、関数 x は重調和関数でなければならないことを示している。しかし(4)式は降伏点以後の変形では成立しない。応力がしだいに増大して塑性変形が生ずるときの応力分布も降伏が生じないかぎりには弾性理論によって導かれた応力分布とほぼ同一であるとみなしてよい。このような塑性変形が生じた場合も平面応力のときの応力関数 x が存在することは明らかである。

本実験の場合を考えると、降伏点以前において結晶高分子は、一般に未延伸状態では球晶であって、等方的な結晶組織を形成している。この変形進行を現象的に観察すると降伏点においては試験片にいわゆるネッキング（くびれ）を生じ、それ以後伸長にともなうくびれた部分がしだいに派生拡大していく、そうしてくびれによって内部構造は不連続に繊維構造に移行していく。

そこでこのような弾性領域から降伏状態に移行する現象を観察検討せんがために、物体をミーゼスの条件を満足する非硬化弾完全塑性体（第12図）と仮定してみる。この場合には降伏応力を σ_c とすると(4)の条件式のかわりに降伏条件は次の式で表わされる。

$$\sigma_x^2 - \sigma_x \sigma_y + \sigma_y^2 + 3\tau_{xy}^2 = \sigma_c^2 \quad \dots\dots\dots(5)$$

(5)式に(3)式を代入すると次の式がえられる。

$$\left(\frac{\partial^2 x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 x}{\partial y^2} \right)^2 + 3 \left[\left(\frac{\partial^2 x}{\partial x \partial y} \right)^2 - \frac{\partial^2 x}{\partial x^2} \cdot \frac{\partial^2 x}{\partial y^2} \right] - \sigma_c^2 = 0 \quad \dots\dots\dots(6)$$

この偏微分方程式を満足する x を適当な境界条件によって定めればそれから応力成分がえられる。そこで(6)式の特性曲線を $y=y(x)$ で表わすと、その方程式は次のようになる。

$$\left(2\frac{\partial^2 x}{\partial x^2} - \frac{\partial^2 x}{\partial y^2} \right) \left(\frac{dy}{dx} \right)^2 - 6\frac{\partial^2 x}{\partial x \partial y} \frac{dy}{dx} + \left(2\frac{\partial^2 x}{\partial y^2} - \frac{\partial^2 x}{\partial x^2} \right) = 0 \quad \dots\dots\dots(7)$$

したがって

$$(2\sigma_y - \sigma_x) \left(\frac{dy}{dx} \right)^2 + 6\tau_{xy} \frac{dy}{dx} + (2\sigma_x - \sigma_y) = 0 \quad \dots\dots\dots(8)$$

これによって特性曲線が定まるためには、 $\frac{dy}{dx}$ についての代数方程式の判別式 D を調べればよいことになる。

$$\begin{aligned} D &= 9\tau_{xy}^2 - (2\sigma_y - \sigma_x)(2\sigma_x - \sigma_y) \\ &= 3\sigma_c^2 - (\sigma_x + \sigma_y)^2 \end{aligned} \quad \dots\dots\dots(9)$$

ここで $|\sigma_x + \sigma_y| < \sqrt{3}\sigma_c$ のときは2つの実根が存在する。したがって各点を通る2本の特性曲線が存在することになる。そうしてこの曲線の傾斜は次のようになる。

$$\frac{dy}{dx} = \frac{-3\tau_{xy} \pm \sqrt{3\sigma_c^2 - (\sigma_x + \sigma_y)^2}}{2\tau_{xy} - \sigma_x} \quad \dots\dots\dots(10)$$

このような特性曲線にそって現象の不連続が起こりうるので、この曲線にそう平面すべりが生ずることになる。そこで x 軸を一樣引張方向にとれば $\sigma_y = \tau_{xy} = 0$ となって $\sigma_x^2 = \sigma_c^2$ となる。したがって2組の双曲線形のすべり線が存在する。すべり線と x 軸との傾斜は $dy/dx = \pm\sqrt{2}$ となって

引張方向と $\tan^{-1}\sqrt{2}=54,7^\circ$ をなすことがわかる。

4 実験結果および考察

実験結果をまとめたものが第2, 4および5表である。そうして第4図は第1表の数値を図示し

Tabelle 2. Versuchsergebnisse.

Nr.	0°—Richtung			45°—Richtung			90°—Richtung		
	Dehnungs- prozent	%	Zug-Nenn- spannung kg/mm ²	Dehnungs- prozent	%	Zug-Nenn- spannung kg/mm ²	Dehnungs- prozent	%	Zug-Nenn- spannung kg/mm ²
1	OS	10	2,338	OS	8	2,425	OS	5	2,456
2	US	22	1,869	US	16	1,773	US	12	1,674
3		20	1,908		20	1,787		20	1,693
4		40	1,888		40	1,849		40	1,756
5		60	1,894		60	1,898		60	1,823
6		80	1,904		80	1,866		80	1,836
7		100	1,943		100	1,880		100	1,887
8		120	2,031		120	1,932		120	1,883
9		140	2,187		140	1,904		140	1,862
10		160	2,337		160	1,953		160	1,893
11		180	2,483		180	2,042		180	1,894
12		200	2,651		200	2,194		200	1,942
13		220	2,811		220	2,343		220	1,929
14		240	3,014		240	2,512		240	2,057
15		260	3,183		260	2,651		260	2,106
16		280	3,370		280	2,715		280	2,202
17		300	3,555		300	2,960		300	2,334
18		320	3,734		320	3,011		320	2,530
19		340	3,894		335	B 3,248		335	B 2,608
20		360	4,083						
21		375	B 4,235						

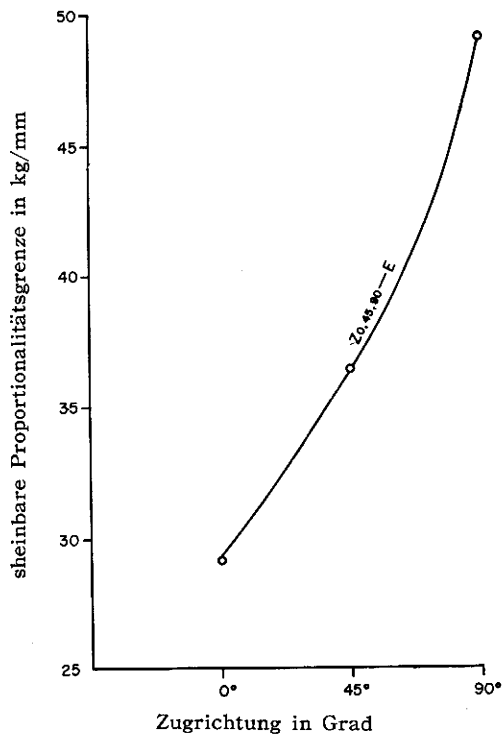
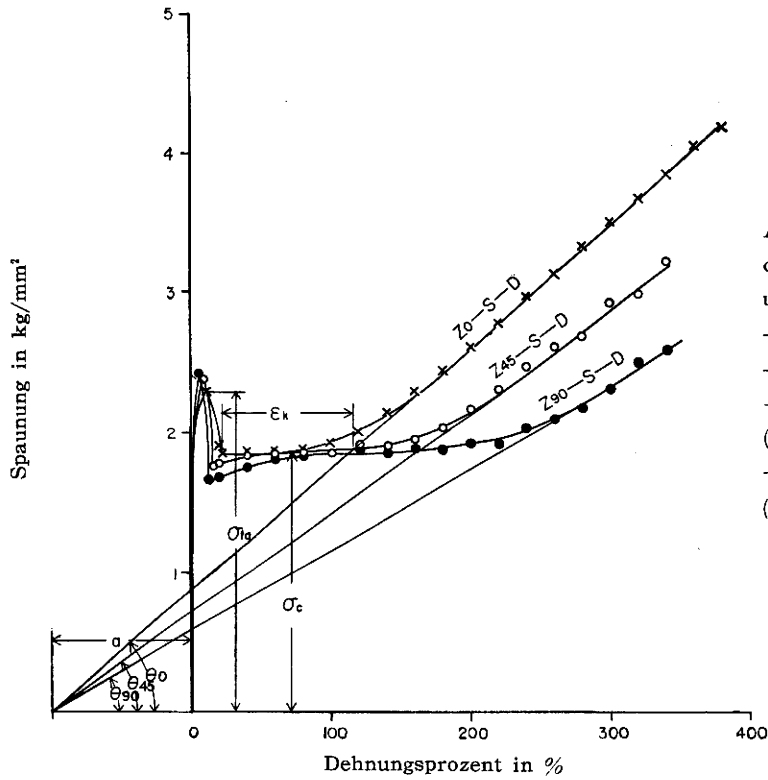
Bem. OS : obere Streckgrenze, US : untere Streckgrenze, B : Zugfestigkeit.

た応力—ひずみ曲線である。ここで曲線の初期の線形部分の傾斜は見かけの弾性を示している。無延伸フィルムの試験片が引張力を受ける場合、外力が小さいうちは試験片内の球晶は弾性抵抗を示し、外力を取りはずすと原形にもどる。この場合の見かけのヤング係数を示すと第3表のようである。

Tabelle 3. Beziehung zwischen der Zugrichtung und dem scheinbaren Youngschen Koeffizient

Zugrichtung	scheinbarer Youngscher Koeffizient kg/mm ²
0°	29,05
45°	36,42
90°	49,12

第5図で示した第1表の引張方向と見かけのヤング係数との関係では、90°方向のヤング係数は他方向のそれに比べて大きい値を示している。90°方向の試験片では弾性領域の伸び率が少なく、これは内部応力が大きいことに原因している。内部構造的に考察すると、鎖状分子がある程度カレンダ



方向に配向していて配向度において 90° 方向は他に劣り、内部応力が外部の引張力に対して負け、直ちに鎖状分子が引張方向に配向するように挙動する。したがって伸び率が小さいときに弾性を失い、その結果ヤング係数が大きくなる。

第4図で示した応力-ひずみ曲線の弾性領域において、応力がいわゆる上降伏点に達したとき、弾性抵抗を失って内部構造に永久平面すべり、すなわち塑性流動現象が現われてくる。このような現象を金属弾性学では弾性破損といっているが、引続き引張力を加えていくとネッキング現象が現われると同時に内部応力の低下をきたすことがわかる。このような変形は不均一に行なわれていき断面積のくびれをとまなうものであって、あたかも高分子物質を軟化温度以下で延伸して、分子に配向を与える過程において生ずる挙動と全く同じであると思われる。

そこで試験片の引張方向がネッキング現象によって生ずる伸び率と幅とに及ぼす影響を調べると

Tabell 4. Versuchsergebnisse.

	Nr.	Belastung g	Zug-Nenn- spannung g/mm ²	Verlänge- rung mm	Dehnungs- prozent %	min. Bleite mm	min. Querschnitt mm ²	Zugspa- nnung g/mm ²
0°-Richtung	1	5	2	0	0,00	10,0	$\times 10^{-3}$ 276,0	2
	2	575	2083	2	2,50	9,5	262,0	2193
	3	620	2246	4	5,00	9,5	262,2	2365
	4	640	2319	6	7,50	9,5	262,2	2441
	5	625	2264	8	10,00	9,0	248,4	2516
	6	615	2228	10	12,50	8,8	242,9	2532
	7	580	2101	14	17,50	7,2	198,7	2919
	8	550	1993	18	22,50	6,8	187,7	2930
	9	540	1957	22	27,50	6,5	179,4	3010
	10	550	1993	26	32,50	6,0	165,6	3321
	11	550	1993	30	37,50	6,0	165,6	3321
	12	550	1993	34	42,50	6,0	165,6	3321
45°-Richtung	1	165	598	0	0,00	10,0	276,0	598
	2	610	2210	2	2,50	9,8	270,5	2255
	3	630	2283	4	5,00	9,2	253,9	2481
	4	615	2228	5	6,25	9,0	248,4	2476
	5	610	2210	7	8,75	8,0	220,8	2763
	6	560	2029	10	12,50	6,5	179,4	3121
	7	525	1902	13	16,25	6,0	165,6	3170
	8	555	2004	16	20,00	5,5	151,8	3656
	9	530	1920	20	25,00	5,5	151,8	3491
90°-Richtung	1	50	181	0	0,00	10,0	276,0	181
	2	610	2210	2	2,50	9,5	262,2	2326
	3	670	2428	4	5,00	9,3	256,7	2610
	4	660	2391	6	7,50	9,0	248,4	2657
	5	640	2319	8	10,00	8,0	220,8	2899
	6	560	2029	10	12,50	6,5	179,4	3122
	7	535	1938	12	15,00	5,3	146,3	3657
	8	535	1938	14	17,50	5,3	146,3	3657
	9	540	1957	18	22,50	5,3	146,3	3691
	10	550	1993	22	27,50	5,3	146,3	3759

第4表のようである。この結果から伸び率と最小幅の変化との関係を図示すると第6図のようである。これによると、引張方向がいずれの場合でも伸び率がほぼ20%まではネッキング現象によって

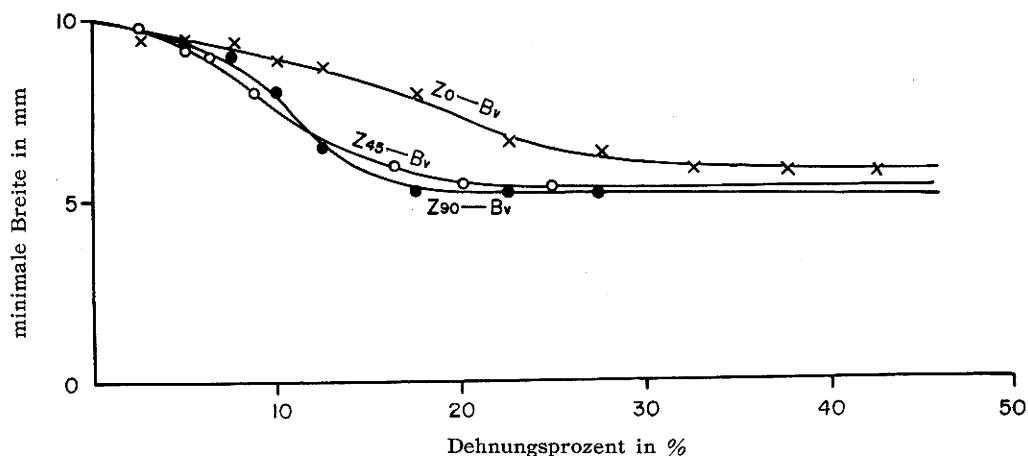


Abb. 6. Einfluss der Zugrichtung auf die Breiteverkleinerung durch Einschnürung und den Dehnungsprozent.

最小幅が減少していき、その後伸び率が増加してもほとんど幅の変化が安定し一定値にとどまることからわかる。0から20%までの伸び率間では0°方向のもの (Z_0-B_v 曲線) は幅の減少がゆっくりとそうして引張方向の角度がしだいにふえると急激に一定値に近づく ($Z_{90}-B_v$ 曲線)。またネッキング現象の安定したところでは引張方向の角度がますますつれて最小幅が小さくなっていることがわかる。

この現象は内部構造の究明によってわかるが、引張りによって生ずる鎖状分子の回転によって繊維構造に移行するために、0°方向のものに比較して90°方向のものの最小幅が最も小さくなるものと考えられる。

次に第4表からネッキング現象の進行状態を図示すると第7, 8および9図のようである。同図は横座標に引張方向を、縦座標に試料の幅半分におけるネッキング現象を表わしている。そうして第7図の①②③……⑫は第4表における0°方向のものの Nr. 1, 2, 3……12に該当した現象をそれぞれ示している。①～④の実線で示したものは弾性変形と思われる部分で一様に伸びるが、⑤～⑫の点線はネッキング現象の進展挙動を示している。また⑫以後は引張りによって生ずるネッキングの最小幅は一定値にとどまって延伸されていくことを意味している。

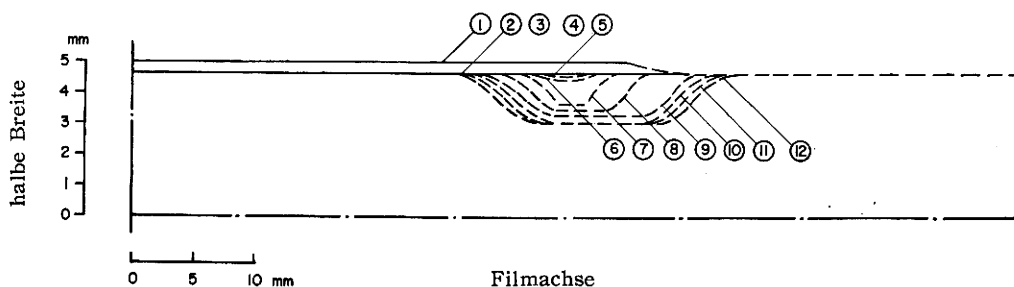


Abb. 7. Ausdehnungszustand der Einschnürung bei 0°-Richtungsspannung.

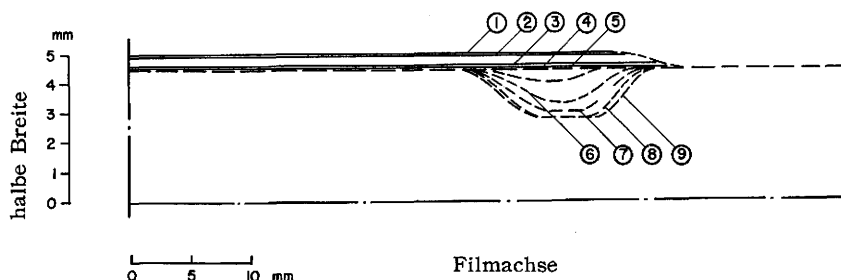


Abb. 8. Ausdehnungszustand der Einschnürung bei 45°-Richtungsspannung.

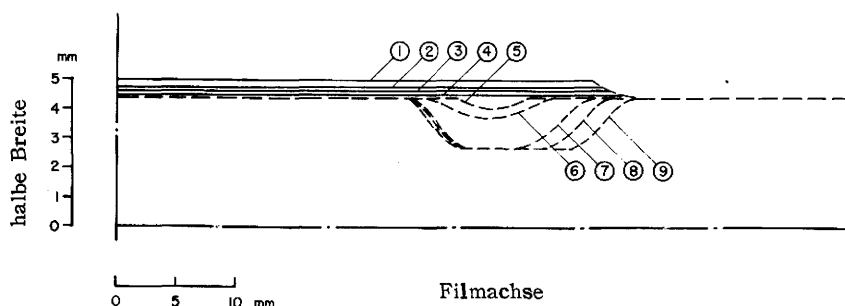


Abb. 9. Ausdehnungszustand der Einschnürung bei 90°-Richtungsspannung.

次に第4図の応力—ひずみ曲線における弾性領域から塑性領域への移行過程に対応する試験片の変形様相の骨格図を示すと第10図のようである。同図の下方の Z_0-S-D , $Z_{45}-S-D$ および $Z_{90}-S-D$ などの曲線はそれぞれ0°, 45°および90°方向に引張試験を行なった場合の応力—ひずみ曲線を示している。そうしてそれらの曲線上の黒丸の点は上あるいは下降伏点を示す。それぞれの降伏点に対応する試験片の変形外観がその上方に示されている。

同図のDは $Z_{45}-S-D$ 曲線で上降伏点に達した瞬間の試験片のがいばうを示している。 $Z_{45}-S-D$ 曲線に示したような点線は上降伏点以後引続き荷重した場合の予想軌跡を示している。また試験片外観図に記入している点丸の記号は試験条件に対応する時点に、試験片の偏光顕微鏡によって内部構造を調べた位置を示している。この場合には試験片のがいばうにはほとんど変形は認められない。したがって弾性領域では巨視的および微視的に一様な変形をうけているように思われる。写真 j および k に示すように、ただ刃こぼれによる影響と思われるような微細なすべり発生の兆候がみられたが、試験片の中央部（点丸O）ではすべりは全く認められなかった。

次に弾性領域の変形を与え上降伏点に達して数秒放置した例を示したものがEの $Z_{90}-S-D$ 曲線である。この場合には弾性領域で一様に弾性延伸を受けていたものが、その時点で試験片全体が同時に伸びなくて、l, m, n 部分のように塑性延伸相と塑性無延伸相とが生じ、ひずみが延伸相から無延伸相へとでんぱしていき、このような両相の境界がくびれとなる挙動を示す。写真 l, m および n ではこの塑性延伸相、すなわち塑性流動部のみを明らかに示し、無延伸相、すなわち弾性領域と画然と区別することができる。同図の弾性領域の点丸O部では内部構造的なすべりは全く認められなかった。

このようなくびれがネッキング現象と一般にいわれているが、塑性延伸相が塑性無延伸相に向かって進むことによって次の塑性延伸が行なわれ、下降伏点に達したものをCの $Z_{90}-S-D$ 曲線が示している。試験片のくびれの部分の内部構造を示すと写真 g, h および i のようにすべりが発生

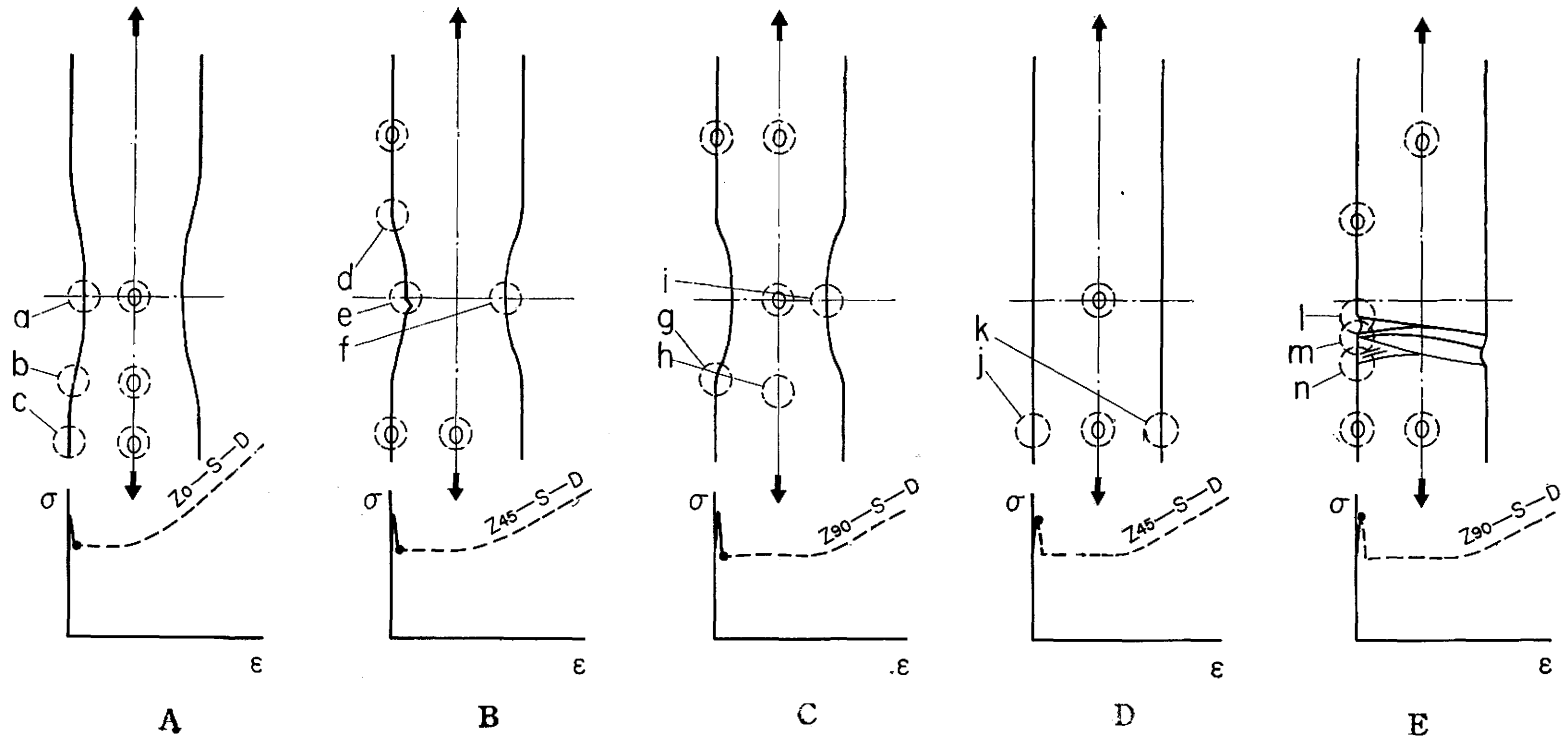


Abb. 10. Beziehung zwischen der oberen und unteren Streckgrenzen und dem Probefilmaussehen.

A : Aussehen für untere Streckgrenze bei 0° -Richtungsspannung. Siehe Bild ⑧, ⑨, ⑩.

B : Aussehen für untere Streckgrenze bei 45° -Richtungsspannung. Siehe Bild ④, ⑥, ⑦.

C : Aussehen für untere Streckgrenze bei 90° -Richtungsspannung. Siehe Bild ⑤, ⑪, ⑫.

D : augenblickliches Aussehen der oberen Streckgrenze bei 45° -Richtungsspannung. Siehe Bild ①, ⑬.

E : Aussehen nach der einigen Sekunden des Erreichen von der oberen Streckgrenze bei 90° -Richtungsspannung. Siehe Bild ②, ⑭, ⑮.

しているが、その中央部では発生していない。またくびれ外の部分、すなわち無延伸相では全くすべりを認めなかった。

引張方向 45° の応力—ひずみ曲線、すなわち Z_{45} — S — D における下降状点の挙動を B が示している。試験片の塑性延伸相 d, e, f では写真 d, e および f が示しているようにすべりの発生がみられたが、無延伸相の点丸 O 部分では全く認められなかった。

次に引張方向 0° すなわちカレンダー方向の応力—ひずみ曲線 Z_0 — S — D の下降状点の挙動を A が示している。写真 a, b および c が示しているように塑性延伸相の a, b, c 部分では明らかにすべりの発生過程を示し $c \rightarrow b \rightarrow a$ へとすべりの発生現象が進展していくことがわかる。

このようなネッキング現象は如何なる機構で生じ、どのようにしてでんば進行するかは従来からいろいろと内部構造学的に考えられてきてきわめて興味のあることである。今後も破損機構の研究対象として取扱っていくべき問題であると考えられる。

従来のネッキング機構に関する考え方は弾性限界に達した高分子のある一部に流動が生じ、これに接する部分が最も流動しやすくなる。この易流動化する原因は内部構造と摩擦熱の伝導とが考えられる。

Bryant によるとこれは結晶部の間を埋める無定形部分に延伸による圧力が生じ、この力が結晶部の凝集力を減少させてすべりを容易にする。すなわち距離がひろげられて隣接分子の間のポテンシャルエネルギーが小さくなる。そのためせん断力がこれに打勝つ状態になりすべりが起こることである。また摩擦熱説もあるが、それ独自による説明は不合理とされる点が多いように思われる。したがって、Bryant の示したような網目構造の特異性に主因をおき、摩擦熱説は二次的に考えるほうが妥当のように思われる。

本実験で認められたネッキング現象について考察する事項を記すと次のようである。

- (1) 応力—ひずみ曲線とからみて一種の応力緩和現象の様相を示している。外力に対して内部応力が生ずると応力が外力に耐えきれなくなり、外力を緩和させるように内部の分子鎖が挙動するように思われる。
- (2) 分子の配向度の劣るものは内部の分子同志が離れ乱れているから分子の凝集エネルギーが小さく切離されやすい。したがって伸び率の小さいところでネッキングがはじまると考えられる。
- (3) ネッキングにより試験片の最小幅が一定となるのは、延伸部分では延伸方向への分子の配向がほぼ完了してこの部分の応力は外力に勝るために、いわゆる配向が不充分である無延伸部分への延伸へとネッキングが進行していく結果と思われる。
- (4) ネッキング部分でおきた分子鎖の流動をともなった配向のために無定形部分に圧力が生じ、この力により結晶部分の流動を容易にすると思われる。

第7, 8および9図に示されているネッキングの進行状態を内部構造的に観察してみる。

弾性破損を行なった点すなわち降伏点に達すると同時に、試験片の内部にすべり線の発生を認められることは前述したが、最初は試験片の側面から微細なすべり線となって派生しはじめ、延伸を増すとともにこのすべり線の数を増し、しだいに交叉したすべり線と変化していわゆるすべり帯の形成をとってくる。ここで 0° , 45° および 90° 方向引張りにおけるネッキング現象の進行状態をそれぞれ写真 $0^\circ-5$, $0^\circ-6$, $0^\circ-9$; $45^\circ-5$, $45^\circ-6$, $45^\circ-7$, $45^\circ-8$, $45^\circ-9$; $90^\circ-5$, $90^\circ-6$, $90^\circ-7$, $90^\circ-8$, $90^\circ-9$ が示していて、ネッキング現象の進行とともにすべり面が変わっていくことがわかる。ここで写真の記号は第4表においての引張方向と Nr を意味しそのときの内部構造を示している。そうして写真でもわかるように流動領域の最終部分では再度試験片の側面に微細なすべり線を残し、これは内部応力が増加しはじめて消滅していく。第8表でみるように、すべり線の幅は延伸とともにしだいに太くなっていく。

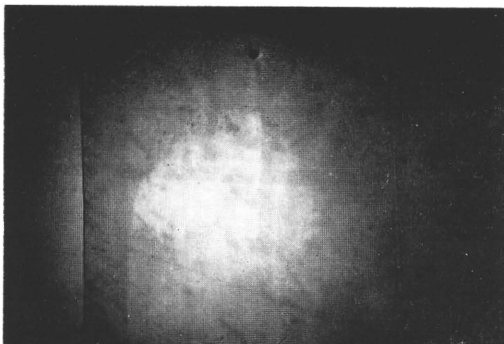


Bild (0°—5). Fliessfiguren in Nr. 5. bei 0°—
Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.

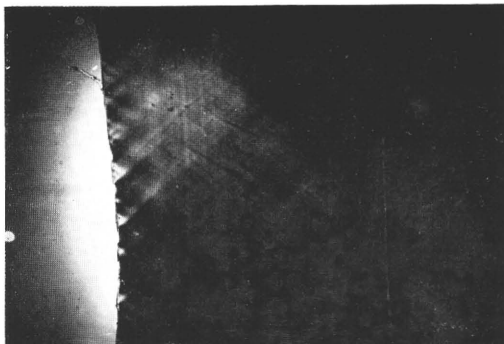


Bild (0°—6). Fliessfiguren in Nr. 6. bei 0°—
Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.

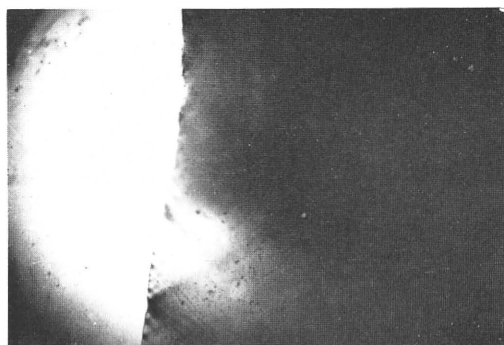


Bild (0°—7). Fliessfiguren in Nr. 7. bei 0°—
Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.



Bild (0°—9). Fliessfiguren in Nr. 9. bei 0°—
Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.

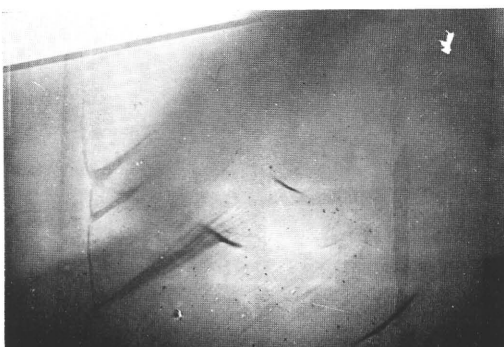


Bild (45°—5). Fliessfiguren in Nr. 5. bei 45°
—Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.

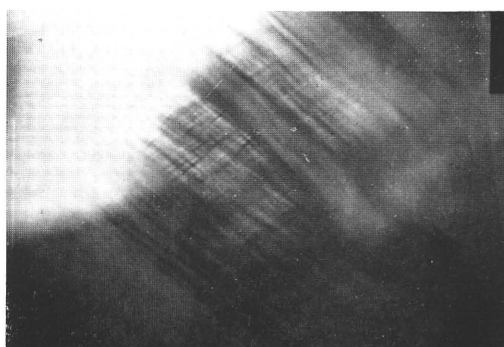


Bild (45°—6). Fliessfiguren in Nr. 6. bei 45°
—Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.



Bild (45°—7). Fließfiguren in Nr. 7. bei 45°
—Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.



Bild (45°—8). Fließfiguren in Nr. 8. bei 45°
—Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.



Bild (45°—9). Fließfiguren in Nr. 9. bei 45°
—Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.



Bild (90°—5). Fließfiguren in Nr. 5. bei 90°
—Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.

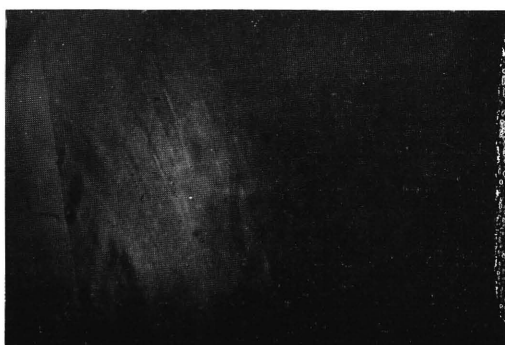


Bild (90°—6). Fließfiguren in Nr. 6. bei 90°
—Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.

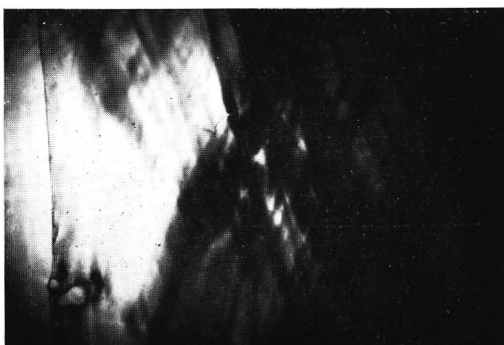


Bild (90°—7). Fließfiguren in Nr. 7. bei 90°
—Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.

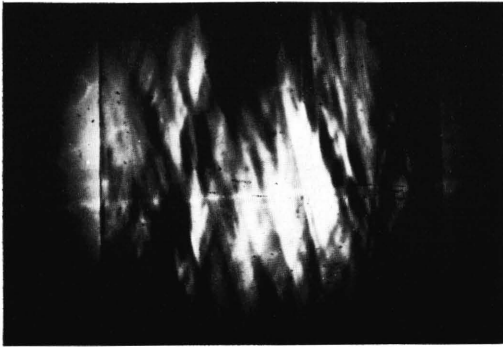


Bild (90°—8). Fliessfiguren in Nr. 8. bei 90°—Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.

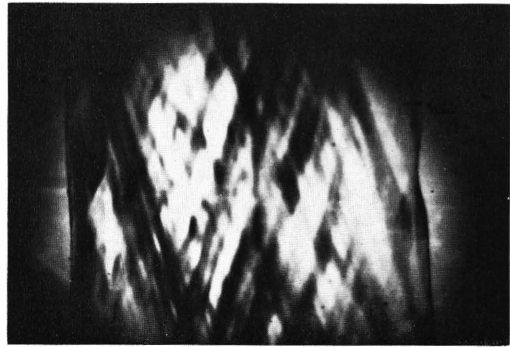


Bild (90°—9). Fliessfiguren in Nr. 9. bei 90°—Richtungsspannung (Tabelle 4.). 20 fach.

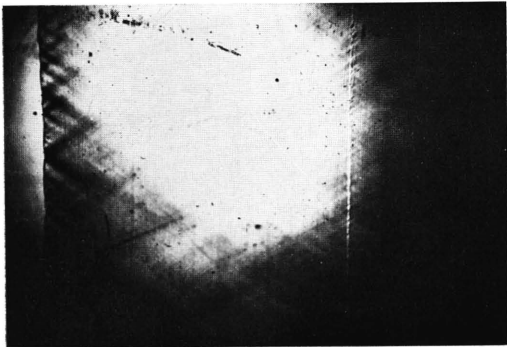


Bild (0°—10%). Fliessfiguren in Dehnungsprozent 10 bei 0°—Richtungsspannung (Tabelle 5.). 20 fach.

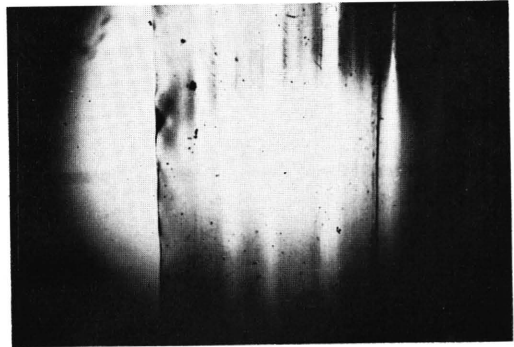


Bild (0°—50%). Fliessfiguren in Dehnungsprozent 50 bei 0°—Richtungsspannung (Tabelle 5.). 20 fach.

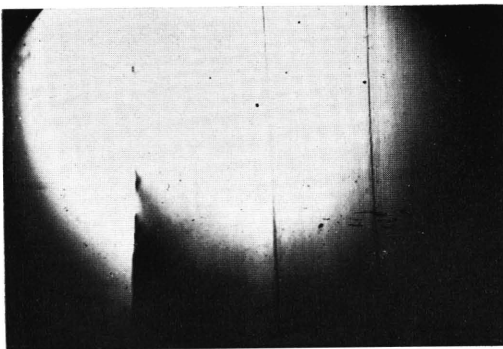


Bild (0°—100%). Fliessfiguren in Dehnungsprozent 100 bei 0°—Richtungsspannung (Tabelle 5.). 20 fach.



Bild (45°—8%). Fliessfiguren in Dehnungsprozent 8 bei 45°—Richtungsspannung (Tabelle 5.). 20 fach.



Bild (45°—50%). Fließfiguren in Dehnungs-
prozent 50 bei 45°—Richtungsspannung (Ta-
belle 5.). 20 fach.



Bild (45°—200%). Fließfiguren in Dehnungs-
prozent 200 bei 45°—Richtungsspannung
(Tabelle 5.). 20 fach.

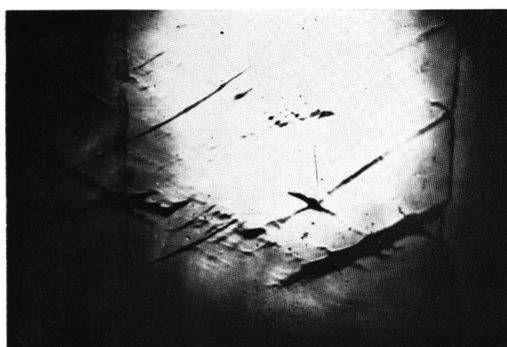


Bild (90°—5%). Fließfiguren in Dehnungs-
prozent 5 bei 90°—Richtungsspannung (Ta-
belle 5.). 20 fach.

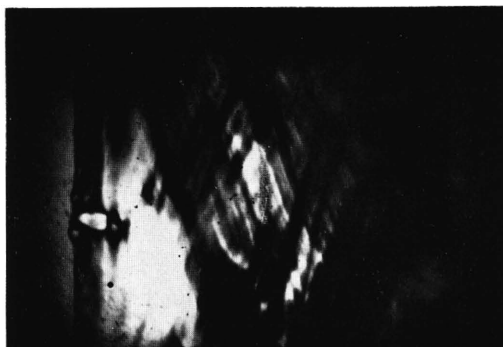


Bild (90°—50%). Fließfiguren in Dehnungs-
prozent 50 bei 90°—Richtungsspannung (Ta-
belle 5.). 20 fach.



Bild (90°—250%). Fließfiguren in Dehnungs-
prozent 250 bei 90°—Richtungsspannung (Ta-
belle 5.). 20 fach.

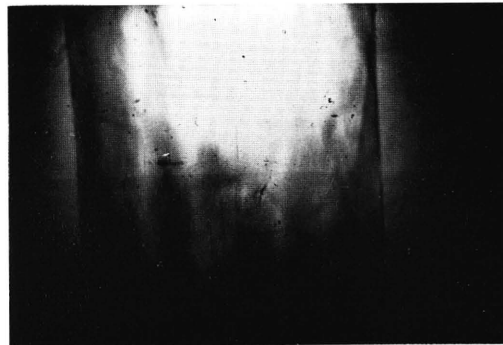


Bild (90°—300%). Fließfiguren in Dehnungs-
prozent 300 bei 90°—Richtungsspannung (Ta-
belle 5.). 20 fach.

Tabelle 5. Versuchsergebnisse.

	Dehnungs- prozent %	Belastung g	min. Querschnitt mm ²	Zug- spannung kg/mm ²	θ °	ϕ °	μ	τ kg/mm ²	σ kg/mm ²
0°-Richtung	10	650	10 ⁻³ 248,4	2,617	38	12	0,219	1,298	1,601
	22	525	187,7	2,797	41	6	0,141	1,385	1,585
	50	520	165,6	3,140	49				
	100	645	165,6	3,895	63				
45°-Richtung	8	665	220,8	3,012	35	18	0,325	1,414	2,021
	16	530	165,6	3,200	36	14	0,328	1,507	2,079
	50	520	151,8	3,426	72				
	100	540	151,8	3,557	73				
	150	525	151,8	3,458	74				
	200	605	151,8	3,986	77				
90°-Richtung	5	645	256,7	2,513	37	15	0,277	1,208	1,763
	12	530	179,4	2,954	44	2	0,041	1,474	1,537
	50	535	146,3	3,657	71				
	100	475	146,3	3,247	76				
	150	540	146,3	3,691	70				
	200	530	146,3	3,623	80				
	250	650	146,3	4,443	80				

Tabelle 6. Beziehung zwischen dem Dehnungsprozent und dem Fließwinkel.

Dehnungsprozent %	OS	US	50	100	150	200	250
Zugrichtung							
0°-Richtung °	52 (10%)	49 (22%)	41	27			
45°-Richtung °	55 (8%)	54 (16%)	18	17	16	13	
90°-Richtung °	53 (5%)	46 (12%)	19	14	20	10	10

Bem. OS : obere Streckgrenze, US : untere Streckgrenze.

Tabelle 7. Beziehung zwischen dem Dehnungsprozent und der Zugrichtung.

Zugrichtung	0°- Richtung	45°- Richtung	90°- Richtung
Dehnungsprozent in Fließbereich %	90	152	215

次に降伏点で発生するすべり線のなす角度は最大せん断応力説では45°になるが、実験ではこれといくぶんずれがあるので、別に実験を行ない内部摩擦説にしたがって内部摩擦係数 μ を計算して一表にしたものが第5表である。ただし θ はすべり面と引張方向に垂直な面とのなす角で $\theta=45^\circ-\phi/2$, $\mu=\tan\phi$ である。同表のすべり角 θ は対応する写真0°—10%, 0°—50%, 0°—100%; 45°—8%, 45°—50%, 45°—200%; 90°—5%, 90°—50%, 90°—250%, 90°—300%から求めた。また伸び率とすべり線のなす角度との関係を求めると第6表および第11図のようである。

同図からわかるようにいずれの引張方向においても上降伏点で発生するすべり角度は52°—55°の

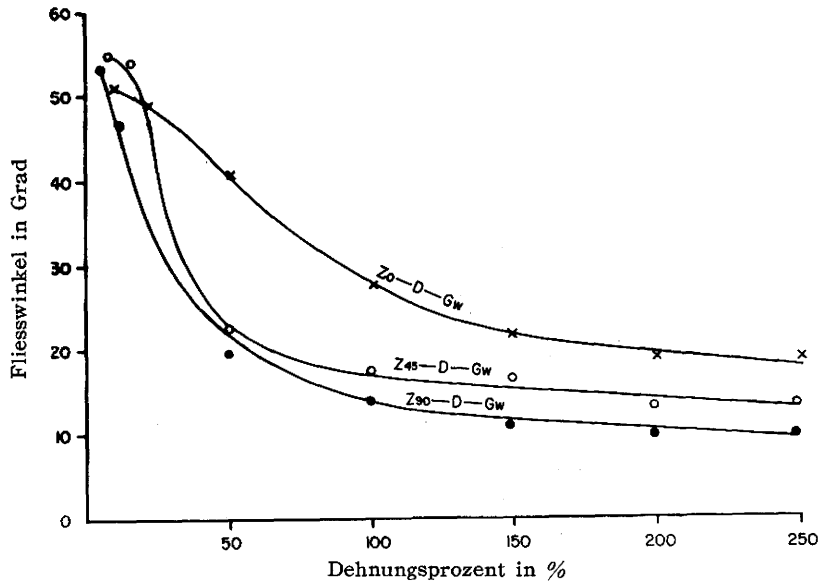


Abb. 11. Einfluss der Zugrichtung auf den Fließwinkel, von der Filmachse bis zur Fließlinie eingeschlossen und den Dehnungsprozent.

小範囲にあって下降伏点におけるそれは 46° ～ 54° の範囲にある。ただここで 45° 方向引張りにおけるものはすべり角が上下降伏点で 54° でほとんど変わらないが、 90° 方向引張りのものと同様に伸び率50%までは急激に減少することがわかる。これに対して 0° 方向引張りのものは伸び率100%まで

Tabelle 8. Beziehung zwischen dem Dehnungsprozent und der Fließlinie.

Dehnungsprozent %				50	100	150	200
0°-Richtung	Länge der Fließlinie mm		0,35 (10%)	0,25 in der seite	0,15 in der seite		
	Abstand der Fließlinie mm		0,50~1,00 (10%)				
	Breite der Fließlinie mm		0,03 (10%)	0,05~0,07	0,05		
45°-Richtung	Länge mm	0,60~0,80 (8%) in einer Richtung		2,00~2,10 kreuzend			
	Abstand mm	0,10~0,15 (8%)		0,15~0,20	0,2		
	Breite mm	0,05~0,25 (8%)		0,05			
90°-Richtung	Länge mm	1,50~1,75 (5%) in einer Richtung	0,55~1,00 (12%)	2,50~3,00 kreuzend	0,75~0,85	3,25~3,50	1,00~1,50
	Abstand mm	0,50~1,00 (5%)	0,25~0,30 (12%)	1,25~1,50	0,20~0,25	0,20~0,25	0,25~0,50
	Breite mm	0,025 (5%)	0,025 (12%)	0,05	0,05	0,15	0,05

はゆるやかに減少している。このような現象を呈することは無延伸のフィルムの場合は無定形部の中に様に球晶が包含されていて、引張方向によって配向が異なっていることを示すものである。

次に伸び率とすべり線の長さ、間隔、幅などの関係を示すと第8表のようである。また応力—ひずみ曲線におけるこのような流動領域では応力の細かなふれが観察された。この現象は金属の双晶変形に似ているが、高分子物質の場合は内部構造が金属の場合と異なっているので、直ちに金属結晶学で用いられている転位論を導入してこれを説明するのは無理であるように思われる。

以上実験で得られた資料をもとにして流動領域で考えられる点をまとめてみると次のようである。

- (1) 応力—ひずみ曲線でみられるとおり応力がほぼ一定で変形が時間とともに続くような流動領域があり、この現象は試験片のとりかたによって異なる。
- (2) 分子鎖の配向度の劣る 90° 方向試験片は引張りによる配向が完了するまでに時間がかかり、そのための流動領域が長いように思われる。
- (3) すべり線がしだいに延伸方向に回転するのは結晶自体が延伸にともなって配向していき、そのために結晶相互のすべり線も延伸方向に回転接近していくものと思われる。
- (4) (3)に述べたような機構で延伸されていくとすべり線はしだいに消滅していく。
- (5) 90° 方向の流動領域の長いのは分子相互の滑脱が容易であることによる。

次に流動領域が終わると内部応力が増加する。これを金属の構造学的に解釈すれば加工硬化現象である。そこで加工硬化現象についての説明は転位が結晶内を通過すると結晶は塑性変形をする。しかしこのような転位が通過した後に残るものはもとの完全結晶であるので、結晶は外形的に変化するのみで内部的には変化がないはずであるが、結晶内の転位密度は増加して結晶が硬化するということである。

しかし高分子物質の内部構造は鎖状分子であることから金属の結晶とは異なっているので転位論で説明をすることは適切でないように思われる。

そこでポリプロピレンの結晶について考えると、ポリプロピレンの最初に生成されたポリマーは Natta によるとアイソタクチックの結晶型Ⅰのポリマーであるといわれている。これを 60°C 以下で延伸したり、またはカレンダー処理を行なうと結晶変態を生じ結晶型Ⅱになることが明らかにされている。この結晶型Ⅱはポリプロピレンの力学的性質を大きく左右する。結晶型Ⅱの構造が多く含まれるフィラメントまたはポリマーは強度が大きい。このようなことから応力—ひずみ曲線の流動領域後における内部応力の増加現象は結晶変態と密接な関係がある。

第4図からわかるように流動領域後における応力とひずみとの関係は引張方向によって異なるが横座標上の1点に会するような特徴的な線形である。そうして1点に会する点はほぼ引張速度に等しい。第4図の応力—ひずみ曲線をモデル化してみると第12図のようになる。ここでひずみと応力との関係を次のようにほぼ表わすことができる。

$$\varepsilon_t = \frac{\sigma_{ta}}{E} + \varepsilon_k + \frac{\sigma_{ta} - \sigma_e}{F}$$

ここで ε_t : 引張ひずみ, σ_{ta} : 引張実応力, E : ヤング係数, F : 塑性係数, σ_e : 降伏応力である。図から θ_0 , θ_{45} , θ_{90} を求めるとそれぞれ 41° , 35° , 30° であるからそれぞれの引張方向における塑性係数を F_0 , F_{45} , F_{90} とすれば $F_0 = 0.87\text{kg/mm}^2$, $F_{45} = 0.70\text{kg/mm}^2$, $F_{90} = 0.58\text{kg/mm}^2$ となる。流動領域後の応力—ひずみ関係を要約すると次のようである。

- (1) 変形に対する応力の変化は特徴的な線形である。
- (2) アイソタクチックポリプロピレンを 60°C 以下で延伸するために結晶変態が生じ、力学的に強度を増す。それにくわえて分子鎖の緊張と配向が高度化するためガラス繊維のような変形をする。

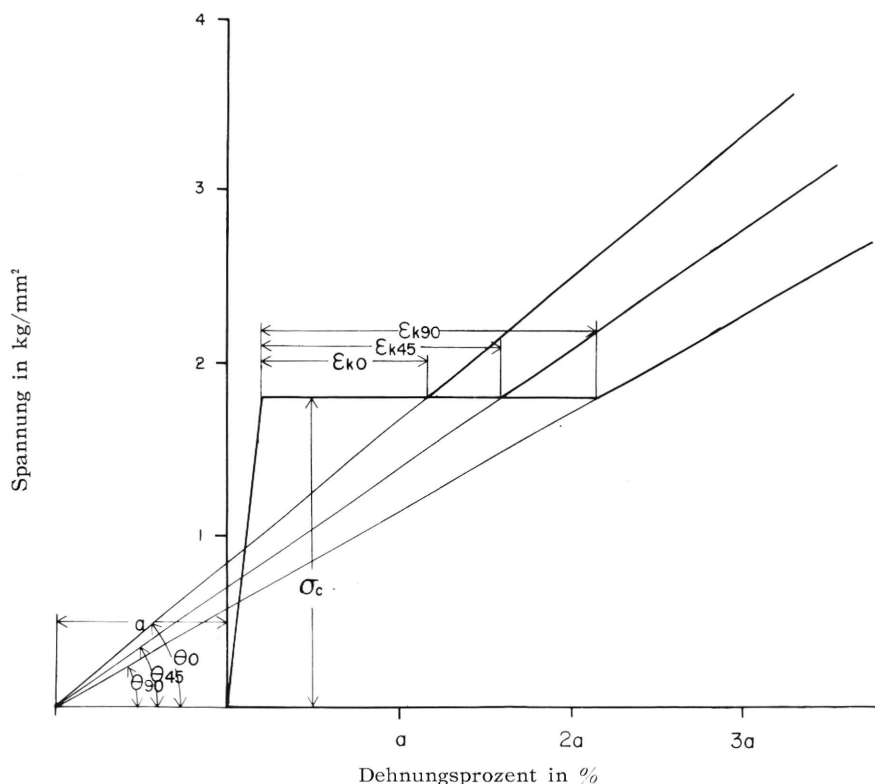


Abb. 12. Modelldarstellung von Spannung-Dehnungsprozentkurve.

- (3) 90°方向の伸び率の低いのは0°方向に比べて流動領域が長い分子鎖の緊張および配向度がきわめて高度化され、その結果もろくなっている。

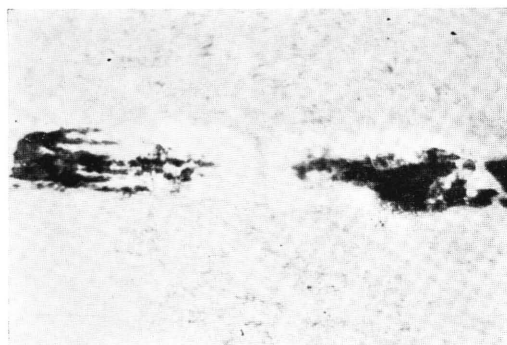


Abb. 13. Brucherscheinung des Films.

次に応力—ひずみ曲線の最終の部分である破断現象については第13図に示すように脆性破壊の現象を認めた。これは分子のすべりによるものか、分子の主鎖の切断のために起こるものかを考えなければならない。主鎖の切断によるとすれば、①破断の速度が分子のすべりを許さないとき②分子のからみ合いが相当量の分子に存在するとき③結晶のすべりとか、破壊が起こらないときなどと思われる。

また分子のすべりによって起こるとすればポリプロピレンのらせん構造に含まれるすべり面のすべりが考えられる。

これらのことを詳しく考えるためにいまフィルムの断面構造を想像してみると、そこには当然分子が一樣にじゅうてんされているのではなくて、分子のかたまりが集って一つの断面を形成して多くのすきまが存在する。このような状態の物質に外力が加えられると応力は、全体に一樣に分布されないでそれぞれのかたまりの形によってきわめてゆがんだ状態で発生する。したがって切断破壊はこのような断面に沿って起こるのではなくて、ある断面を形成するかたまりの最も弱いとこ

ろを選んで進行すると考えられる。そこで主鎖のかたまりが集って形成している断面のうちで最も弱い断面とかあるいはまたすきまに小さなクラックを生じそれらにらせん構造のすべり面におけるすべりが作用して Orowan の理論が示すような破断のしかたで全面破壊をおこすと考えられる。

5 総 括

本実験では最初に意図したように、ポリプロピレンフィルムの変形と破壊について独自の方法によって実験と考察を進めてきて引張試験におけるすべり線の発生と進展過程とはほぼ明らかになったが、すべり線の方法は一般に最大せん断応力の方向すなわち引張軸に対する傾角 45° と一致しないことがわかった。引張軸に対して $52^\circ \sim 55^\circ$ の値をとることが本実験で観察された。さきに特性曲線論に基づいて導かれた理論値 54.7° は、本実験結果に明快な説明を与えるものである。したがってすべり線の方法と最大せん断応力の方向の不一致は内部摩擦説を裏付ける一つの証拠とも考えられたこともあるが、特性曲線論による説明のほうが妥当である。また金属の変形および破壊にみられるようなよく似た現象をいくつか観察した。以下列挙すると次のようである。

- (1) 応力-ひずみ曲線の初期部分における弾性
- (2) 金属の流動変形領域における双晶変形による応力変動にかよった応力の微細なふれ
- (3) 金属のすべり変形に似たすべり帯の発生
- (4) 金属の加工硬化に似た流動領域経過後の内部応力の増加

これらのことがらについてはもちろん金属の変形現象をもとにして考察してみたがまだじゅうぶん説明しつくせないところが多く残っている。したがってこんごはコム状網目構造でえられたような理論を加味しながら内部分子論的に考察を進めなければならないと思われる。

これまでにいろいろと総括して述べてきたが、終局として本実験でえた応力-ひずみ曲線よりポリプロピレンの実用上考えられる事項として次のようにあげられる。

- (1) ポリプロピレンの厚膜の加工に当たっては一方向への延伸よりも多方向への延伸を施すほうが加工が容易である。
- (2) このような二次元のフィルムを細くしていき窮極を一次元の糸とみなすならばある程度の塑性延伸を行なったものを利用すればよい。
- (3) このような考えかたで糸にバルキネスを持たせようとするならば流動変形領域における加工がよいことがわかる。

こんごこれらの事項についてさらに検討して製品への二次加工が行なわれなければならないと思われる。

最後に本実験をしじゅう熱心に手伝った高橋征司、三田村民雄両君にあつく感謝の意を表する。

文 献

- 1) T. Alfreg : Mechanical Behavior of High Polymers, P. 488
- 2) D. A. Zaukelles : T. of Applied Physics, 33, 9, P. 2797
- 3) 日本金属学会 : 転位論の金属学への応用
- 4) 物性物理学講座 9 : 物性における光学的問題・塑性

(昭和40年3月31日受理)

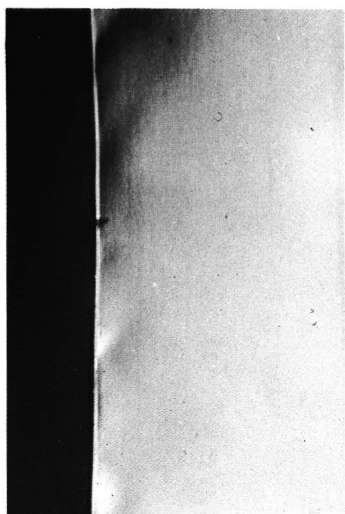


Bild a 40 fach.

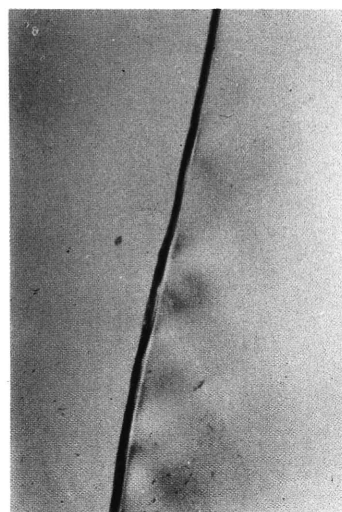


Bild b 40 fach.

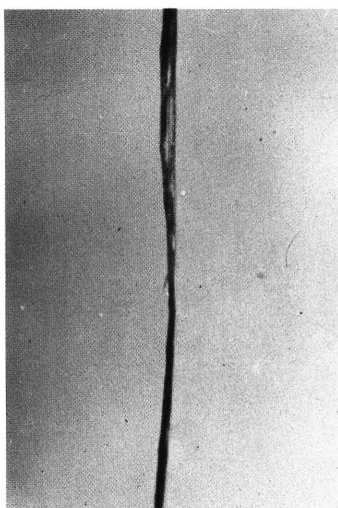


Bild c 40 fach.

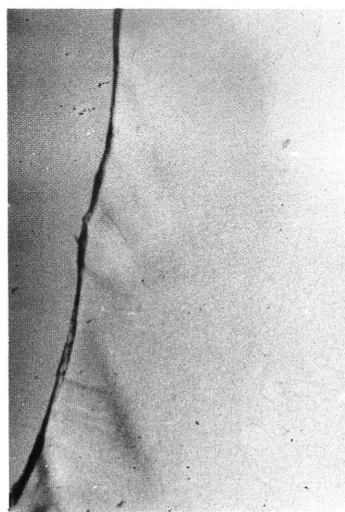


Bild d 40 fach.



Bild e 40 fach.

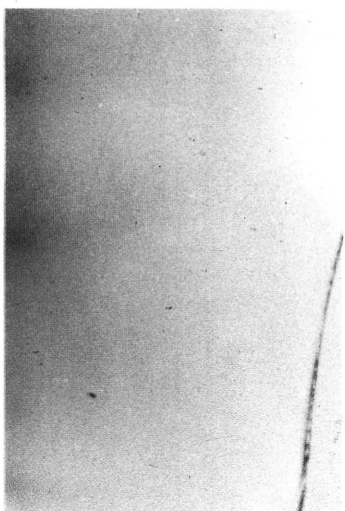


Bild f 40 fach.

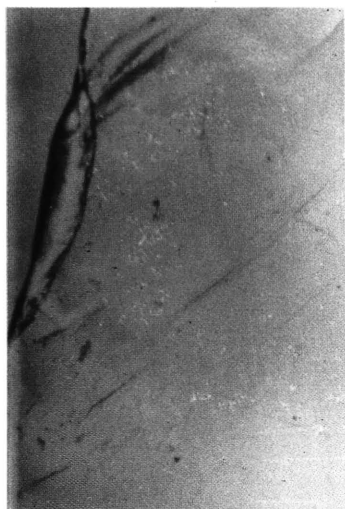


Bild g 40 fach.



Bild h 40 fach.



Bild i 40 fach.

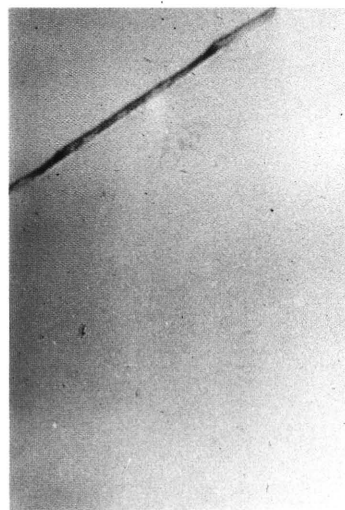


Bild j 40 fach.

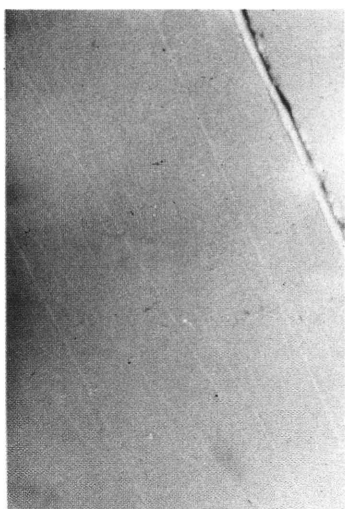


Bild k 40 fach.



Bild l 40 fach.

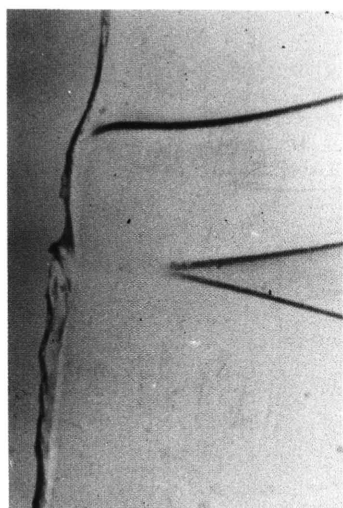


Bild m 40 fach.

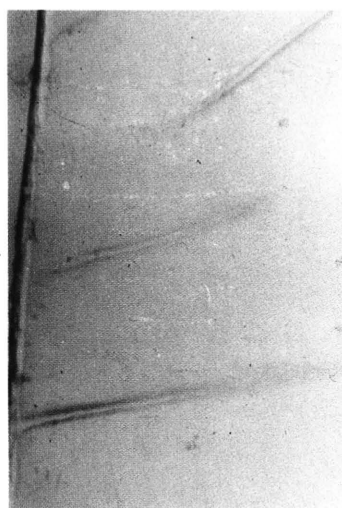


Bild n 40 fach.

